

Tダイキャスト成形における成形性と製品物性

金井俊孝*

はじめに

Tダイキャスト成形は、フラットなフィルムを成形する上で非常に重要な成形法である。この成形法はインフレーション成形法とならび、ポリオレフィンのフィルム成形に広く用いられ、インフレーション成形法に比較し、フィルム厚みの均一性が良好で、高生産性が得られる点で優れている。

最近では、包装材料としてのフィルム成形は、市場競争力に耐え抜くため、高生産性を目指し、高速化、広幅化の傾向にある。また、一方では、工業材料用の高分子フィルムとして軽薄短小化が進み、薄くて厚み精度の良いフィルムの製造が要求されるようになってきた。

このような状況下において、Tダイキャスト成形の高速引取条件下における安定性、延伸性を含めた成形性向上は非常に重要な課題であり、高品質なフィルムを製造するためには、より厳密な均一性が必要となっている。

そこで、本報ではTダイキャスト成形の成形性及び製品物性に関して述べてみたい。

1. ポリマーの性質と成形性

ポリマーの性質はよく言われているように粘弾性的性質を示す。

分子量が小さく分子量分布の狭いポリマー〔図1(a)〕は、ニュートン流体に近い挙動を示し、変形時の分子鎖のからまり合いは小さく、分子鎖間のすべりが主体的に起こるため延伸切れは起こりにくい。一方、高分子量成分を含むポリマーや長鎖分岐を多く持つポリマー〔図1(b)〕は、分子鎖間のからまり合いが起こるため弹性効果が強くなる。このため、ある応力以上をかけるとポリマー間どうしの流動だけでは対応できなくなり、分子間の切断が起こり延伸切れが起こる。

このようなポリマーの流動性を知るには、せん断粘度と伸長粘度を測定すると分かる(図2)。せん断粘度に関しては、キャビラリーレオメータあるいはコーン&プレートレオメータで評価することができる。弾性的性質の強いポリマーは非ニュートン性を示し、高せん断側で粘度がせん断速度とともに急速に低下する。また、応力に対する

第一法線応力差のデータでは、分子量分布が広く、長鎖分岐の多いほど同一せん断応力下における法線応力は大きく、弹性効果は強くなる(図3)。

一方、ダイを出た以降の挙動を評価するには、伸長変形が起こっているため伸長粘度が有用な手段となる。測定法などについては他報^{1)~4)}を参照していただきとして、伸長粘度と分子構造の関連について述べてみたい。

高密度ポリエチレン(HDPE)、ポリプロピレン(PP)^{2),4)}、ポリブテン(PB)⁴⁾などのポリオレフィンの分子量分布を変化させた場合、分子量分布が広いほど伸長粘度はヒズミ速度の増加とともに低下する(ヒズミ速度軟化)。この傾向はせん断粘度の傾向と類似している(図4)。

長鎖分岐量と伸長粘度の関係を知る上で、3種類のPE(HDPE, LDPE, L-LDPE)について比較してみよう。

長鎖分岐を含むLDPEはヒズミ速度

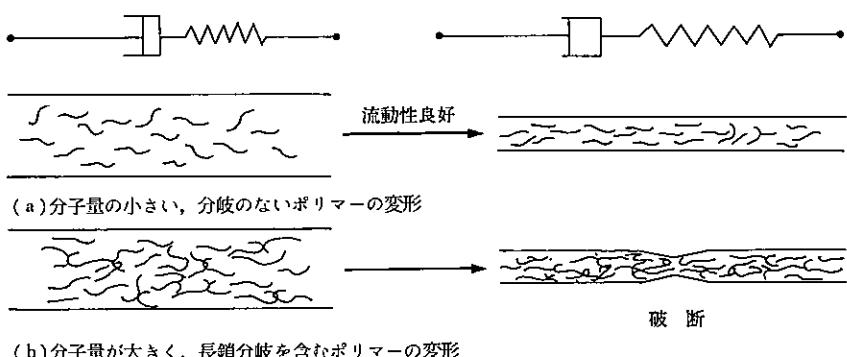


図1 伸長変形時の流動性の比較

* Toshitaka Kanai
出光石油化学㈱ 樹脂研究所

の上昇に伴い伸長粘度は増加する（ヒズミ速度硬化）傾向にある（図5）。一方、長鎖分岐量の少ない、分子量分布の狭いL-LDPE, HDPEではニュートン流体的な性質を示している。分子量分布の広いHDPEでは、前述したようにヒズミ速度軟化する。また、LDPEは粘度の温度依存性が他のPEに比較して、せん断、伸長粘度ともに大きい。そのため、LDPEは、一般の非等温成形加工中では、伸長変形の進行に従い粘度は急激に上昇する。これらの伸長粘度の挙動は伸長変形を伴う成形加工において重要な意味を持っている。

2. Tダイキャストの変形理論

成形安定性、延伸切れ、フィルム物性あるいは冷却量などの評価をするには、Tダイキャストの変形解析が重要な役割を果たす。この場合、樹脂のレオロジーデータ、冷却風の速度に関する熱伝達係数のデータが必要である。これらのデータ及び成形条件を理論式にインプットすることにより、成形中

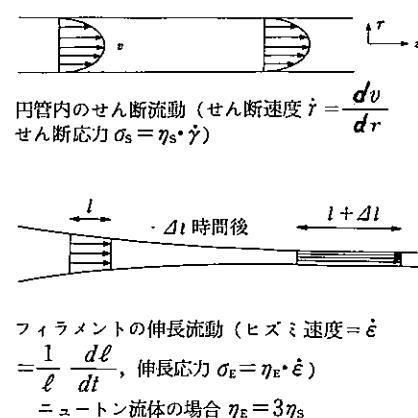


図2 せん断流動と伸長流動の比較

の溶融樹脂の変形挙動が分かる。

そこで、ここではTダイキャスト成形の理論について簡単に述べ、その解析結果について説明を加えてみたい^{5)~7)}。

2.1 ヒズミ速度と応力

Tダイキャスト成形の概略図を図6に示す。 ξ_1 , ξ_2 及び ξ_3 は、任意な点Pでの直交座標系を示し、1は流れ方向(MD), 2は流れと垂直で幅方向(TD), 3は厚み方向を示す。 w , h 及び v は、点Pでのフィルムあるい

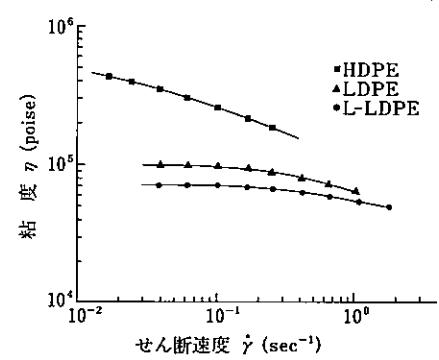
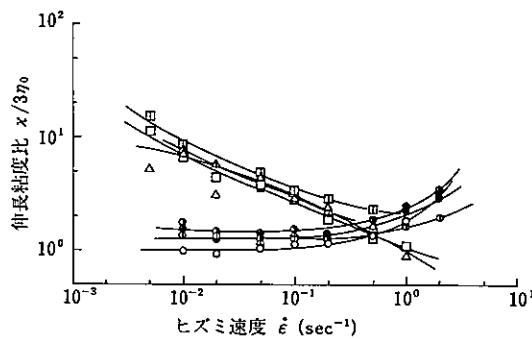


図3 せん断流動特性

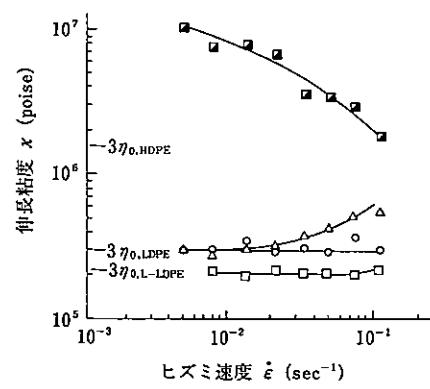
はシートの幅、厚み及び移動速度を示し、 z はダイからの距離を示す。

このような座標系において、任意



コード	M I	$M_W \times 10^{-5}$	M_W/M_N	M_Z/MM_W
○ PP-H-N	4.2	2.84	6.4	2.59
△ PP-H-R-B	5.0	3.03	9.0	3.57
□ PP-H-B-R	3.7	3.39	7.7	3.54
○ PP-M-N	11.6	2.32	4.7	2.81
△ PP-M-R	12.4	2.79	7.8	4.82
□ PP-M-B	11.0	2.68	9.0	4.46
○ PP-L-N	25.0	1.79	4.6	2.47
○ PP-L-R-N	23.0	2.02	6.7	3.18

図4 各種ポリプロピレンのヒズミ速度と伸長粘度の関係(筍島らによる実験結果²⁾)



コード	M I	$M_W \times 10^{-5}$	M_W/M_N	密度
□ HDPE	2.8	1.17	3.4	0.960
■ HDPE	0.9	1.73	14.1	0.958
△ LDPE	1.9	1.12	4.1	0.923
○ L-LDPE	2.1	0.84	3.4	0.919

図5 各種ポリエチレンのヒズミ速度と伸長粘度の関係

表 1 樹脂特性

樹脂	M I ^{a)}	密度 (g/cm ³)	$\eta_0(240^\circ\text{C})$ (poise)	M_w	M_w/M_n	$E^b)$ (kcal/mol)
出光 PP	700N	0.91	15,000	250,000	3.8	10.6
	F 200S	0.91	40,000	340,000	4.0	10.6
	E 100G	0.91	140,000	510,000	4.0	10.6
出光 HDPE	440M	0.95	110,000	130,000	3.7	7.6
	520B	0.96	370,000	135,000	8.1	7.6
出光 L-LDPE	0214H	0.91	50,000	—	—	11.1
	スミカセン LDPE F 10	0.92	480,000	—	—	16.1

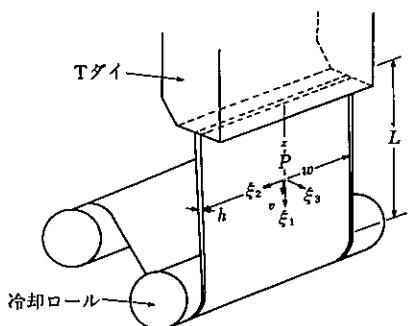


図 6 Tダイフィルム成形の概略図

注 a) M I は PP 230°C, PE 190°C で測定。

b) 活性化エネルギー E はせん断粘度とせん断速度のデータより得られた。

な点 P におけるヒズミ速度テンソル d は、次式で示される。

$$\|d\| = \begin{vmatrix} d_{11} & 0 & 0 \\ 0 & d_{22} & 0 \\ 0 & 0 & d_{33} \end{vmatrix} \quad (1)$$

T D のヒズミ速度 d_{22} は、ネッキングを無視すると 0 になる。

厚み方向のヒズミ速度 d_{33} は

$$d_{33} = \frac{\partial v_3}{\partial \xi_3} = \frac{1}{h} \frac{dh}{dt} = \frac{1}{h} \frac{dh}{dz} \frac{dz}{dt} = \frac{v}{h} \frac{dh}{dz} \quad (2)$$

非圧縮性流体では、次式が成り立つ。
 $d_{11} + d_{22} + d_{33} = 0$

式(2), (3)より、流れ方向 (MD) のヒズミ速度 d_{11} は次式となる。

$$d_{11} = -d_{33} = -\frac{v}{h} \frac{dh}{dz} \quad (4)$$

容積流量 Q は次式で表せる。

$$Q = whv \quad (5)$$

また、点 P での応力はそれぞれ次式で表すことができる。

流れ方向 (MD) の応力 σ_{11} は

$$\sigma_{11} = 2\eta_0(\text{II})(d_{11} - d_{33}) = -\frac{4Q\eta_0(\text{II})}{wh^2} \frac{dh}{dz} \quad (6)$$

幅方向 (TD) の応力 σ_{22} は

$$\sigma_{22} = 2\eta_0(\text{II})(d_{22} - d_{33}) = -\frac{2Q\eta_0(\text{II})}{wh^2} \frac{dh}{dz} \quad (7)$$

II はヒズミ速度テンソル d の第 2 不変量である。

$$\text{II} = d_{11}^2 + d_{22}^2 + d_{33}^2 \quad (8)$$

2.2 力のバランス及びエネルギーバランス

図 6 に示された T ダイキャストフィルム (あるいはシート) の力のバランス式は、次のようになる。

$$-\frac{4Q\eta_0(\text{II})}{h} \frac{dh}{dz} = F_L + \int_z^L wh\rho g dz \quad (9)$$

ただし、
 F_L : ロール位置での引張力
フィルム (あるいはシート) の表面は、対流による熱伝達と放射により冷却され、またダイ出口からロールにタッチする直前までは結晶化温度より十分高く結晶化が起こらないものとする
と、次式が成り立つ。

$$\rho Q C_p \frac{dT}{dz} = -2wU(T - T_{\text{air}}) - 2\varepsilon\lambda w(T^4 - T_{\text{room}}^4) \quad (10)$$

ただし、
 ρ : 密度 (0.75 g/cm³)

C_p : 比熱

U : 热伝達係数

T : フィルム (あるいはシート) 温度

T_{air} : 冷却空気温度

T_{room} : 室温

ε : 放射率

λ : ステファン - ボルツマン定数

熱伝達係数 U は、移動速度の遅い場合、自然対流による無次元式が次式で表される。

$$\left(\frac{UL}{K_{\text{air}}} \right) = 0.664 \left(\frac{v_{\text{ave}} \cdot L \cdot \rho_{\text{air}}}{\eta_{\text{air}}} \right)^{1/2} \cdot \left(\frac{C_{\text{air}} \eta_{\text{air}}}{K_{\text{air}}} \right)^{1/3} \quad (11)$$

ただし、
 K_{air} : 空気の熱伝導率

$$(10.8 \times 10^{-5} \text{ cal/cm-sec-}^\circ\text{C})$$

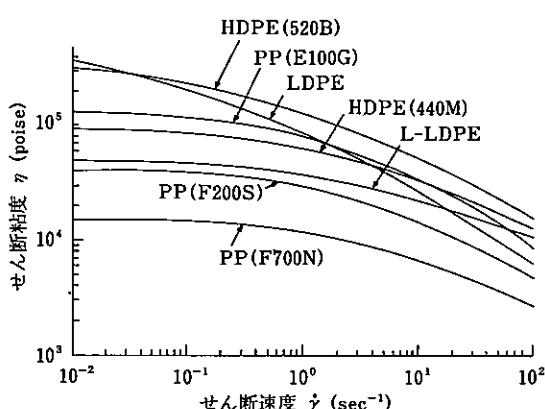


図 7 せん断粘度とせん断速度の関係

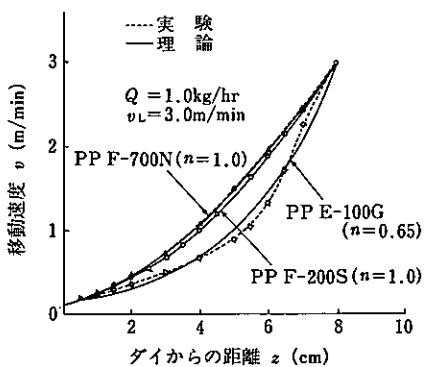


図8 ポリプロピレンの変形速度に関する実験と理論の比較

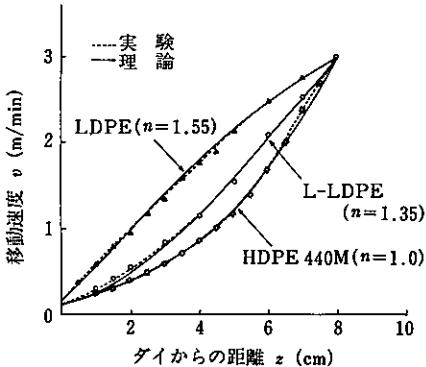


図9 ポリエチレンの変形速度に関する実験と理論の比較

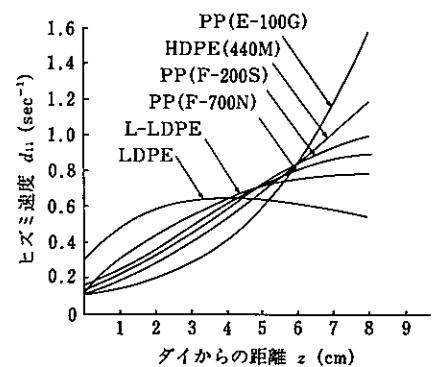


図10 各種の樹脂の成形中のヒズミ速度分布

$$\begin{aligned} \rho_{air} &: \text{空気密度} \\ &(9.4 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3) \\ \eta_{air} &: \text{空気の粘度} \\ &(2.15 \times 10^{-5} \text{ Poise}) \\ L &: \text{エアギャップ} \\ v_{ave} &: \text{平均速度} \\ C_{air} &: \text{空気比熱} \\ &(0.24 \text{ cal/g°C}) \end{aligned}$$

2.3 粘度式

Tダイキャスト成形時の樹脂の溶融粘度は、アレニウス型の粘度式に従うものと仮定すると、溶融樹脂の粘度式は次式で表される。Eは、活性化エネルギー、Rはガス定数、nは指数法則適用時の物質定数、 η_{00} はII=2かつ温度 T_0 の時の粘度。

$$\eta_0 = \eta_{00} \left(\frac{R}{T} \right)^{\frac{n-1}{2}} \cdot \exp \left[\frac{E}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] \quad (12)$$

2.4 理論と実験

上記のような解析手法を用いると、Tダイキャスト成形中の溶融樹脂の変形挙動が計算できる。実験に用いた樹脂のせん断流動のデータを図7に、樹脂特性を表1に示した。

分子量の異なるPPを用いて、ダイ出口からロール接触時までの溶融樹脂の変形挙動結果について理論と実験結果の比較を図8に示した。分子量の比

較的小さい非ニュートン性の弱いPPについては、伸長粘度がニュートン流体($n \approx 1$)的な変形を示しているが、分子量の大きいポリマーは伸長粘度がヒズミ速度軟化し($n < 1$)、変形はロール近くで起こりやすい。この傾向は定常状態下における伸長粘度の傾向と対応している。

3種のPE(LDPE, HDPE, L-LDPE)について移動パターンを比較した結果が図9である。3種の移動速度パターンは大きく異なり、LDPEでは伸長粘度がヒズミ速度硬化する($n > 1$)こと及び活性化エネルギーが大きいことの二つの理由により、初期に変形が起こりやすい。

L-LDPEは移動速度がダイを出てからほぼ直線的に上昇し、HDPE 440Mでは初期よりもロール付近での速

度上昇が顕著であり、また分子量分布が広く、分子量の大きいHDPE 520Bでは、初期の変形が抑えられ、不安定でかつ延伸切れを発生しやすいのが特徴である。HDPEの初期速度が遅い原因は活性化エネルギーが小さいことによるものであり、分子量の大きいHDPEは活性化エネルギーの小さいことのほかに、伸長粘度のヒズミ速度軟化が原因していると考えられる。

成形性と変形挙動の関係を更に関連づけるために、ヒズミ速度と応力パタ

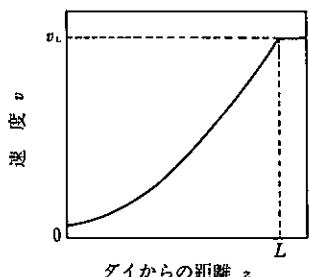


図11 各種樹脂の成形中の応力分布

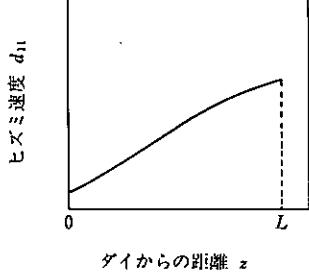


図12 変形中の速度及びヒズミ速度

ーンを図10及び図11に示した。LDPEは初期にヒズミ速度の最大値を示し、他の樹脂と大きな差が見られ、ロール付近ではヒズミ速度がかなり小さい。LDPE, L-LDPE, PP(F700N), PP(F200S), HDPE(440M), PP(E100G)の順で、初期に変形しやすかった傾向からロール付近で変形しやすい傾向に変化しているのが分かる。これらの変形パターンは、長鎖分岐を持つLDPE以外ではせん断粘度の非ニュートン性あるいは実験から得られたn値(ただし、PP F-700N, PP F-200S, HDPE 440Mはすべてn=1.0),活性化エネルギー,スウェル,自重の効果などにより影響を受ける。

図11は、樹脂と変形応力パターンに関する理論計算結果のプロットを示している。応力の絶対値は分子量あるいは η_0 により影響されるが、応力パターンは粘度のヒズミ速度依存性及び温度依存性によって左右される。そのため、LDPEでは初期において変形応力が大きくなり、その他の樹脂はロールタッチ時、つまり冷却固化する寸前で急激に大きくなる。

3. 成形性の評価法

成形不安定現象や延伸切れの対策は、高速成形条件において不可欠であるため、これらの成形性の評価法及び改良のための方法を述べてみたい。

成形不安定性現象を理論的に取扱った文献は溶融紡糸の成形に関して多く見られる^{8)~15)}。ここでは、無次元ヒズミ速度の考え方を用いて成形不安定現象を説明してみたい^{7), 14)}。

この無次元ヒズミ速度パラメーターの意味を以下に述べる。変形されてきた溶融樹脂がロールにタッチする位置で移動速度の変化が急激に変化し、ヒズミ速度について不連続な点を生じる(図12)。このロール接触時におけるヒズミ速度の不連続の度合を、統一的にスケールの大きさによらない数とし

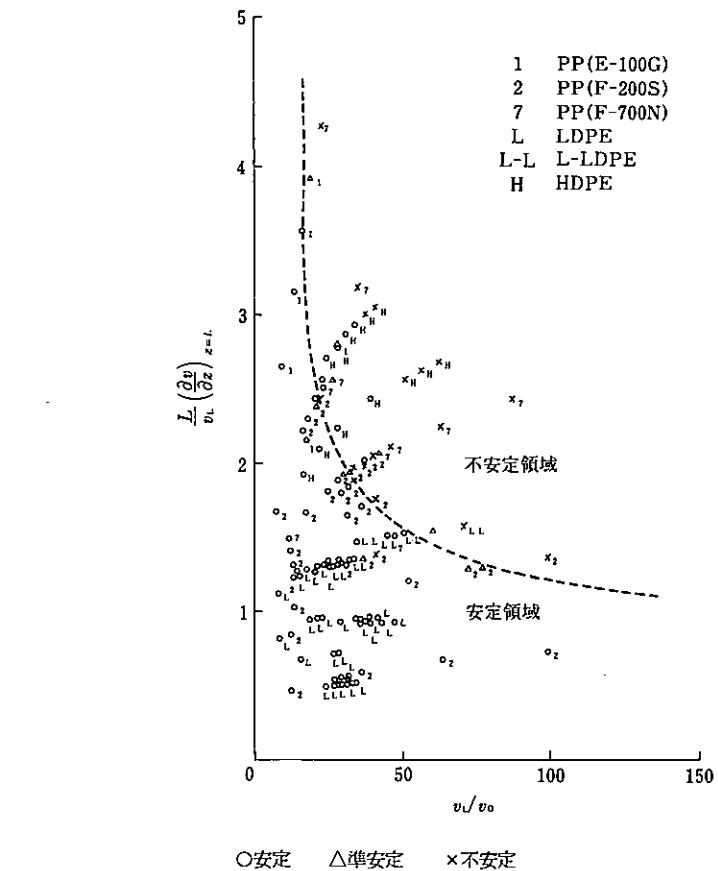


図13 成形安定性とドローダウン比、無次元ヒズミ速度の関係

て取扱うパラメーターが、無次元ヒズミ速度である。

$$\dot{\epsilon} = \frac{L}{v_L} \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_{z=L} = \left(\frac{v/v_L}{\partial(z/L)} \right)_{z=L} \quad (13)$$

そして、この値の小さいほうが不連続の度合が小さく、変動因子は小さくなるため、このパラメーターの値を成形安定性の指標として取扱うことができる。

3.1 成形安定性と樹脂特性

図13に成形安定性と無次元ヒズミ速度及びドローダウン比の関係を示した。なお、図中の破線は成形安定及び不安定領域の境界線を示す。この結果、樹脂の種類が異なる場合においても成形安定性と無次元ヒズミ速度及びドローダウン比の間によい相関性が見られる。ドローダウン比が大きい条件で成形安定性を保つためには、無次元ヒズミ速度の小さい条件を選定する。つまり、樹脂では伸長粘度のn値が大きく、また活性化エネルギーの大きいポリマーが成形安定性に有利であることを意味している。

成形安定性改善のための成形条件を検討してみる。

3.2 成形安定性と成形条件

Tダイキャスト成形において、成形性に最も重要であると考えられる冷却条件について、エアナイフから吹き出される風速を変化させ、成形安定性を評価した(図14)。図15は、移動速度とダイからの距離の関係をプロットしたものであるが、移動速度パターンは

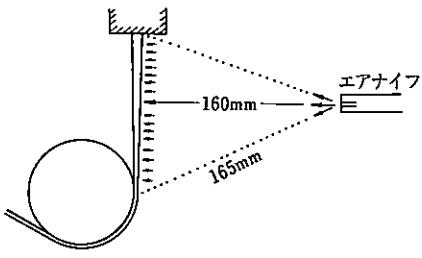


図14 Tダイ成形装置とエアナイフの概略図

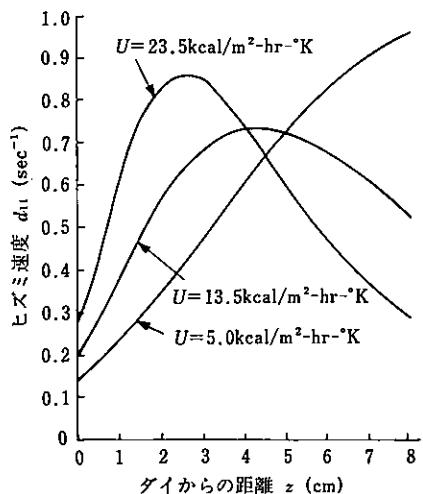


図16 热伝達係数とヒズミ速度パターンの関係 (出光 PPF-200S)

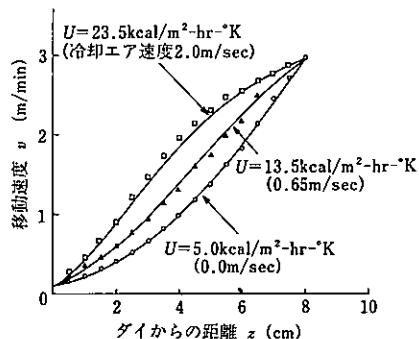


図15 热伝達係数と変形速度の関係 (出光 PPF-200S)

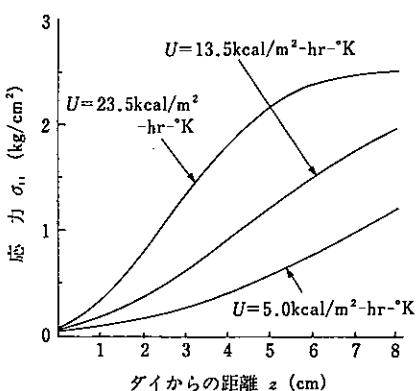


図17 热伝達係数とヒズミ速度パターンの関係

エアナイフから吹出される冷却風量に大きく依存していることが分かる。冷却風を強めることにより、ロール付近でのヒズミ速度が非常に低下し、PPでもLDPEの変形パターンに類似していく(図16)。このため、冷却風は成形安定性に非常に良い効果を与えることになる。冷却風は温度低下にも非常に大きな効果をもたらすため、冷却風を使用することにより粘度上昇が顕著となり、引張り応力はかなり大きくなることが図17から分かる。延伸切れの発生しやすい条件では冷却は悪影響を与える。

冷却条件以外の成形条件として、吐出量、成形温度、エアギャップ量、リップ開度を選定し、成形安定性を評価

し、また同時に各条件におけるドローダウン比、ロール位置でのヒズミ速度、無次元ヒズミ速度の理論計算も合せて行った結果が図13である。

これらの結果から、次のようなことが言える。

- 1) 引取速度以外の成形条件が一定に保たれた場合、引取速度の速いほうが不安定になる。
- 2) 吐出量を増加させると成形安定性の臨界引取速度は速くなる。しかし、吐出量を増加させると臨界ドローダウン比は低下するため、同一厚みのフィルムを得るには吐出量が多いと成形安定性の面で不利になる。
- 3) 成形温度を上げると臨界引取速度は速くなる。

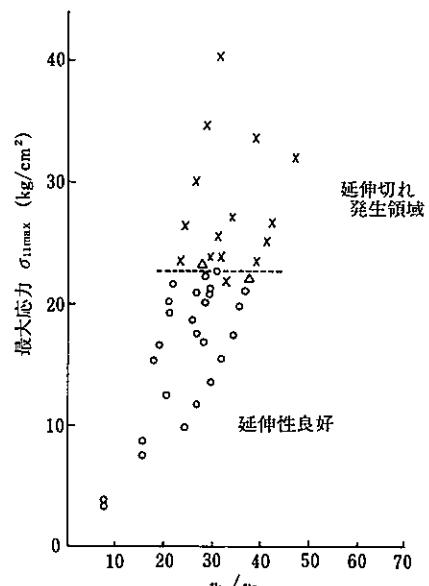


図18 延伸性と成形中の最大応力、ドローダウン比の関係

4) エアギャップ量は成形安定性に大きな影響を与えないが、エアギャップ量が大きいとネッキングが顕著となり、フィルム幅は非常に狭くなる。

5) リップ開度を広くすることは、臨界引取速度が小さくなり、成形不安定を引き起こしやすくなる。リップ開度 0.65 mm から 1.0 mm にすると、臨界ドローダウン比は 3 割低下する。

6) エアナイフを用いた強制冷却は成形安定性を非常に向上させ、ネッキング量を小さくする。ただし、極度に強く吹き付けた場合には、フィルム厚みの均一性や次に述べる延伸切れに悪影響を与える。

3.3 延伸切れ

Tダイキャスト成形中の延伸切れを検討するため、成形安定性が良好で延伸切れが比較的発生しやすい LDPE で実験を行った。その結果、延伸切れと成形条件の関係について次のようなことが言える。

- 1) 吐出量を増加させると、増加した割合だけ引取速度を速くしても延

伸切れが発生しない。換言すると、同一成形温度、エアギャップ、熱伝達係数では吐出量によらず一定の臨界ドローダウン比が存在する。

2) エアギャップが大きいほど、延伸切れは発生しにくい反面、フィルム幅はかなり狭くなり、エアギャップを8 cm から 16 cm にするとネッキング量は 65% も増加する。

3) 成形温度の変化は延伸性に非常に大きな影響を及ぼし、成形温度を上げることは延伸切れ防止に大きな効果がある。LDPE では成形温度が低いほうがネッキング量は若干小さい。

LDPE の延伸切れの有無を調べた実験結果、理論計算から得られた最大応力及びドローダウン比 v_L/v_0 の相関性についてプロットした結果を図 18 に示した。図中の破線は延伸切れ発生の境界線を示す。図からも明らかのように、最大延伸応力が高くなる条件で延伸切れが発生していることがよく分かる。この結果より、最大延伸応力 $\sigma_{11\max}$ を計算することにより、延伸切れの有無を予測することが可能となる。

延伸切れの発生原因は、樹脂の持つある値以上の応力がかかると分子鎖間どおしのすべりだけで変形が対応できなくなり、弾性的なからまり合いから生じる分子切断が発生し、これが延伸切れにつながると考えられる。これは同一樹脂についての臨界応力が存在することを示している。

樹脂を変化させた場合に拡張して考えるには、弾性効果と粘性効果の割合を表すワイゼンベルグ数 (We) を利用するのが便利である^{16)~22)}。

$$We = d_{11} \cdot \tau = \sigma/G \quad (14)$$

$$G = (G'')^2/G' \quad \tau = \frac{G'(\omega)}{\eta_0 \omega^2} \quad (15)$$

ただし、 G : 弹性率

τ : 緩和時間

G' : 貯蔵弾性率

G'' : 損失弾性率

つまり、次式のようにある臨界条件が

$$d_{11} \cdot \tau = d_{11\text{cri}} \cdot \tau_{\text{cri}} \quad (16)$$

あるいは

$$\frac{\sigma}{G} = \frac{\sigma_{\text{cri}}}{G_{\text{cri}}} \quad (17)$$

分かると、それに対応して他の樹脂においても上式を用いて最大ヒズミ速度あるいは最大延伸応力をある程度予測できる。

a. 延伸切れ発生

$$\frac{\sigma_{11\max}}{G} > \frac{\sigma_{\text{cri}}}{G_{\text{cri}}} \quad (18)$$

あるいは

$$d_{11\max} \cdot \tau > d_{11\text{cri}} \cdot \tau_{\text{cri}} \quad (19)$$

b. 延伸切れ発生なし

$$\frac{\sigma_{11\max}}{G} < \frac{\sigma_{\text{cri}}}{G_{\text{cri}}} \quad (20)$$

あるいは

$$d_{11\max} \cdot \tau < d_{11\text{cri}} \cdot \tau_{\text{cri}} \quad (21)$$

なお、 $\sigma_{11\max}$ は樹脂性状及び成形条件を入れて解いた理論値で、 G_{cri} はメカニカルスペクトロメータから得られる最小せん断速度における弾性値である。

このことから言えることは、分子量が大きくあるいは同一分子量では分子量分布が広く、長鎖分岐の多いポリマーほど延伸切れが発生しやすい。これは延伸変形において分子間の流動性が悪く、分子鎖どおしのからまり合いが生じやすいうことと一致する。

4. 冷却

エアナイフによる冷却は、成形安定性の向上やネッキング量の低下のほかに、フィルムの冷却に大きな効果をもたらす。また、溶融フィルムの冷却能力の向上あるいはフィルムの透明性向上という面では、冷却ロールの効果が重要な役割を果たす。

ダイを出てからロールにタッチするまでの温度低下については、前述した式を用いると図 19 のような結果が得られ、冷却風量の違いにより、大きな温度差が生じる。

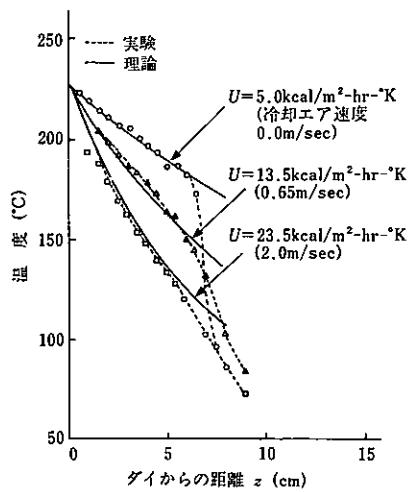


図19 熱伝達係数と温度分布の関係

一方、Tダイキャスト成形の場合には、冷却ロールタッチ後に冷却が急速に行われる所以、この領域を考えてみる。

話を簡単にするため、ロール反対側のフィルム表面の冷却は、ロール側に比較して冷却効果が非常に大きいことを考えると、伊藤²³⁾により次式が示されており、図20を利用することにより容易にフィルム温度を予測できる。

$$Y = \frac{T(x, t) - T_{\text{ロール}}}{T_{\text{初期}} - T_{\text{ロール}}} \\ = erf \phi + \exp \left[X + \frac{X^2}{4\phi^2} \right] \\ \times erfc \left[\phi + \frac{X}{24} \right] \quad (22)$$

$$\text{なお, } X = \frac{U}{k} \cdot x, \phi = \frac{x}{2\sqrt{\alpha t}}, \\ \alpha = -\frac{k}{C_p \cdot \rho}$$

ただし、 $T(x, t)$: フィルムの温度

$T_{\text{ロール}}$: ロールの温度

$T_{\text{初期}}$: ロールタッチ直前のフィルムの初期温度

x : ロール側のフィルム表面からフィルム厚さ方向の距離

k : フィルムの熱伝導率

t : ロールに接触後の時間

ロールにフィルムが密着し、空気層

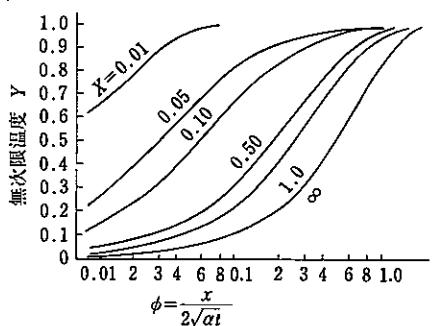


図20 $Y \sim \phi$ 関係

が介在しないような場合には $U = \infty$ となり、次式となる。

$$\frac{T_{(x,t)} - T_{\text{ロール}}}{T_{\text{初期}} - T_{\text{ロール}}} = \operatorname{erf} \left(\frac{x}{2\sqrt{\alpha t}} \right) \quad (23)$$

なお、erf は誤差関数である。

これより冷却効果は、ロールの温度 ($T_{\text{ロール}}$)、ロールの大きさ (t)、ロール表面とロールの密着度 (x) などに依存することが分かる。薄いフィルムの温度は速く低下するが、厚物シートの成形では x が大きくなり、上式の計算も重要な役割を果たす。図 21 は PP の冷却パターンを計算した一例である。(ただし、この計算では結晶化潜熱を無視している)。

冷却ロールの代わりに水冷方式を利用すると、熱伝達の式にかわるので式 (10) が適用され、熱伝達係数は一般に次式のように表される。

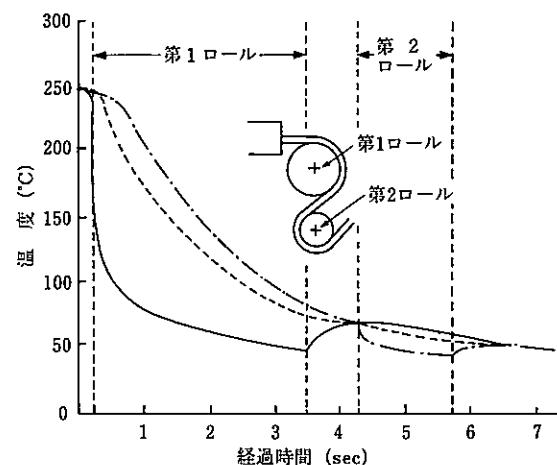


図21 シート成形中の温度パターン

$$\frac{UL}{k} = a \left(\frac{Lv\rho}{\eta} \right)^{1/2} \left(\frac{c\eta}{k} \right)^{1/3} \quad (24)$$

冷却効果を高め透明性を向上させるには、冷却水とフィルムの流速差 v を大きくし、また代表長さ (冷却水とフィルムが接触し始めてからの距離) が小さいほど冷却効果が向上することを示しており、冷却水量及びフィルム表面の熱かき取り効果の大小が冷却に重要な意味を示す。また、水温が低いほうが冷却効率は上がるが、この割合は [フィルム表面温度 - 冷却水温度] の比に依存する。

5. フィルムの物性

Tダイキャスト成形で成形した PP

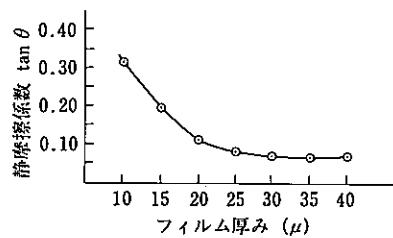
フィルムの諸物性と成形条件の関係を表 2 に示した。一般に、Tダイキャスト成形の成形条件はインフレーション成形のそれと比較し、機械的強度に大きな影響を与えないが、ヒートシール温度、光学特性、静摩擦係数といった特性に影響を与える。

例えば、冷却ロールの温度を上げた場合には、得られたフィルムの結晶化度は上昇する。そのためにヒートシール温度は高くなり、フィルムの光学特性は低下する。また、フィルム表面が結晶化により、凹凸ができる静摩擦係数は低下する。弾性率は結晶化度の上昇のため大きくなる。

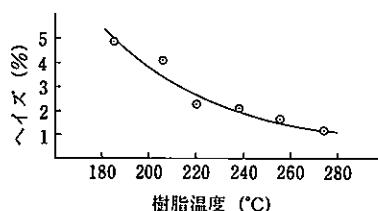
樹脂温度の上昇は、ダイ内でのせん断応力を下げ、ダイを出た以降も緩和

表 2 成形条件とフィルム物性の関係²⁷⁾

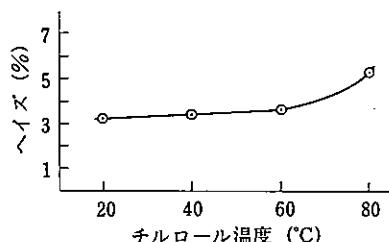
成形条件 方向	フィルム特性 項目		引張り弾性率		引張り降伏強度		引裂き強度		ヒート シール 温 度	ヘイズ	プロス	インパクト	すべり
	MD	TD	MD	TD	MD	TD	MD	TD					
樹脂温度 (180~280°C)	↗	↘	↘	↘	↗	↘	↗	↘	↘	↘	↗	↗	↗
吐出量 (10~80kg/hr)	↗	→	→	→	→	→	→	→	→	↗	→	→	↗
ロール温度 (20~80°C)	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↘	↘
厚み変化 (10~40μ)	↗	↘	↘	↘	↘	↘	↗	↗	↗	↗	↗	↗	↘



(a) フィルム厚みと静摩擦係数の関係



(b) 樹脂温度とヘイズの関係



(c) チルロール温度とヘイズの関係

図22 成形条件とフィルムの物性

が起こりやすく、また急冷されるため光学特性は向上する。結晶化度の低下によりインパクトの上昇と弾性率の低下が見られる。フィルムの厚みが増すと冷却が遅れ光学特性に影響を与える一方、静摩擦係数は大きく低下する(図22)。

6. スケールアップ

試験段階から工業生産へ移行する場合に重要な小型機から大型機へのスケールアップの考え方について述べる。

経過時間に対する応力や変形速度パターンからダイ以降の変形時のスケールアップを考えた場合、図23のようなケースが考えられる。しかしながら、ダイ内のせん断速度を考えると最も単純には吐出量が増加した分だけダイ幅を広くすることが好ましい。シート面

端のネッキング量については基準となるダイ幅が十分大きな場合、ダイ幅を k 倍 (>1) しても、ネッキングの絶対量に大きな変化はないため、比較的有効幅を予測しやすい^{5), 6)}。

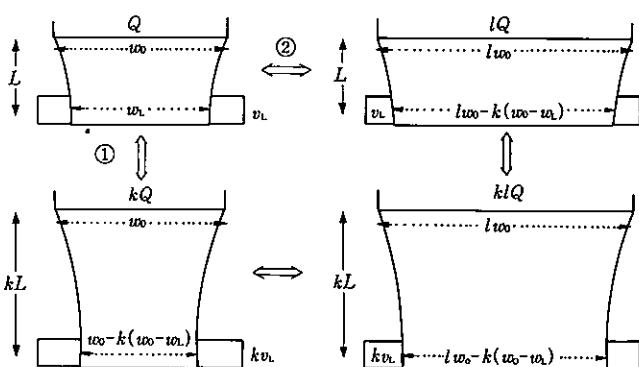
一方、ダイ内の解析法の詳細は別報^{24), 28)}を参照していただくとして、ここでは、ダイのスケールアップについて考えると、ダイを評価する上で重要な圧力、滞留時間、流量均一度の3因子に着目する必要がある。Tダイの場合については、無次元解析により得

られたスケールアップ条件として次の方法が考えられる²⁸⁾。

つまり、ダイを k 倍広げた場合、三つの因子を同時に成立させてスケールアップすることはできないが、近似的にそのうちの二つずつに注目してスケールアップすることは可能である(図24)。

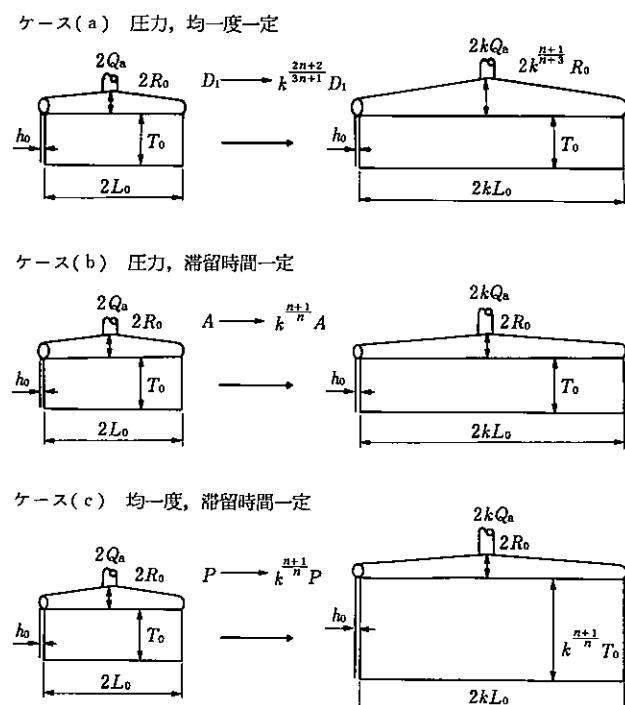
1) ケース(a)の場合、マニホールド部の滞留時間が $k^{\frac{2n+2}{3n+1}}$ 倍だけ長くなる。

2) ケース(b)の場合、均一度は



w₀ : ダイ幅, w_L : フィルム幅, k : エアギャップのスケールアップ倍率, l : ダイ幅のスケールアップ倍率, Q : 吐出量, L : エアギャップ, v_L : 引取速度

図23 スケールアップ則に基づいたスケールアップ条件



D₁ : マニホールド…通過の滞留時間, A : 不均一度 ($U = 1 - A$)
U : 均一度, P : 圧力

図24 Tダイのスケールアップ条件

(1-A) から $(1 - k^{\frac{n+1}{n}} A)$ に低下する。

3) ケース(c)は圧力が $k^{\frac{n+1}{n}}$ 倍大きくなる。

図 24 に示したスケールアップ条件のうち、Tダイの場合実際問題として取りうるケースは(a)と(b)である。すなわち、滞留焼けに対する配慮がそれほど重要でない場合には、ケース(a)が考えられる。一方、スケールアップ前の基準ダイの均一度が良好な場合には、口開きの原因となる圧力、及び滞留焼けの因子となる滞留時間を抑え、しかもその時の均一度の悪化程度がそれほど問題とならないケース(b)がスケールアップ条件として採用され、ケース(a)に比較した場合より一般的であろう。ケース(c)については、圧力値がスケールアップにより増加しすぎるため、通常の場合現実的ではない。

7. まとめ

Tダイキャスト成形を行う上で、樹脂のレオロジー特性、成形条件と成形中の変形挙動、成形性及び得られたフィルム物性の関連を把握することは、成形性の改良や高品質のフィルムを成形する上で重要な情報を与える。

樹脂のレオロジー特性は平均分子量が同一であっても分子量分布や長鎖分岐量により大きく変化し、これが成形安定性や延伸性に大きな影響を与えていた。樹脂では長鎖分岐量、成形条件では冷却風を吹かせることが成形安定性に非常に効果があり、この理由は、ロール接触時のヒズミ速度の不連続性から説明できる。分子量分布を狭くすることは成形安定性、延伸性の面で優れていることを述べた。また、Tダイキャスト成形における冷却過程、フィルム物性、更に工業的にスケールアップする場合の方法についても説明を加えた。

今後ますますフィルムの高品質化が要求されていく中で、フィルムの成形

性向上、押出しの安定化、冷却風速の均一化、ダイの均一な肉厚精度などが要求され、更に高機能化の立場から多層化技術がより一層重要となるであろう。

参考文献

- 1) T. Kanai, J. L. White, "Kinematics, Dynamics and Stability of the Tubular Film Extrusion of Various Polyethylenes," *Polym. Eng. Sci.*, 24, [15], 1185 (1984).
- 2) W. Minoshima, J. L. White, J. E. Spruiell, *Polym. Eng. Sci.*, 20, 1166 (1980).
- 3) 金井俊孝, "ポリエチレンインフレーションフィルムの成形条件と製品特性," *プラスチックスエージ*, 31, [8], 113 (1985).
- 4) H. Yamane, J. L. White, *Polym. Eng. Rev.*, 2, 167 (1980).
- 5) 金井俊孝, "Tダイキャスト法の理論解析," *織学誌*, 41, [10], T-409 (1985).
- 6) 金井俊孝, 船木 章, "Tダイキャスト成形の実験解析," *織学誌*, 41, [12], T-521 (1985).
- 7) 金井俊孝, 船木 章, "Tダイキャスト成形の成形性に関する研究," *織学誌*, 42, [1], T-1 (1986).
- 8) S. Kase, T. Matsuo, *J. Polym. Sci.*, 18, 3279 (1974).
- 9) S. Kase, *J. Appl. Polym. Sci.*, 18, 3279 (1974).
- 10) R. J. Fisher, M. M. Denn, *A. I. Ch. E. Journal*, 23, 23 (1977).
- 11) *ibid.*, 22, 236 (1976).
- 12) Y. Ide, J. L. White, *J. Appl. Polym. Sci.*, 22, 1061 (1978).
- 13) Y. Ide, Ph. D. Dissertation, Univ. Tennessee (1979).
- 14) 鳥海浩一郎, 近田淳雄, 藤本和士, *織学誌*, 41, 8 (1985).
- 15) 鳥海浩一郎, 学位論文, 東京工業大学 (1985).
- 16) 清水 恭, "シート・キャスト成形における樹脂挙動," *出光石油技術誌*, 29, [4] (1986).
- 17) 金井俊孝, "フィルム成形の動力学的研究," 学位論文, 東京工業大学 (1986).
- 18) J. L. White, *J. Appl. Polym. Sci.*, 8, 2339 (1964).
- 19) J. L. White, N. Tokita, *J. Appl. Polym. Sci.*, 11, 321 (1976).
- 20) A. B. Metzner, J. L. White, M. M. Denn, *Chem. Eng. Proc.*, 62, 81 (1966).
- 21) A. B. Metzner, J. L. White, M. M. Denn, *A. I. Ch. E. J.*, 12, 863 (1966).
- 22) J. L. White, W. Minoshima, *Polym. Eng. Sci.*, 21, 1113 (1981).
- 23) 伊藤公正, 加熱と冷却 (工業調査会, 1971).
- 24) 伊藤公正, 押出成形用ダイの設計 (工業調査会).
- 25) 伊藤公正, プラスチックス, 24, [8], 105 (1973).
- 26) 伊藤公正, プラスチックス, 28, [2], 43 (1977).
- 27) 戸倉 昭, 出光技術資料.
- 28) 船木 章, 金井俊孝, "フラットダイの実験解析及びスケールアップ則," *織学誌*, 42, [4], T-203 (1986).

複合プラスチックの材料設計 (改訂第二版)

由井 浩著

B5判 180頁, 定価 4,000円

【本書の内容】

- I. 複合プラスチックの発展——歴史的発展と位置づけ／材料例／用途例
- II. 複合プラスチックにおけるフィラーの役割——フィラーの分類と主な役割／主なフィラーの製法と性質
- III. 複合プラスチックにおける複合効果——複合プラスチックの品質支配因子／複合プロセスと複合プラスチックの品質／力学的性質／熱的性質／燃焼特性／成形性／特殊機能／その他の効果
- IV. 複合プラスチックの高機能化とフィラーの設計——フィラーの形状／粒径／表面／特殊構造の利用

◆(株)プラスチックス・エージ 書籍部
Tel. 03-256-1951 / 06-532-5484